

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **07018366 A**

(43) Date of publication of application: **20 . 01 . 95**

(51) Int. Cl

C22C 33/02
C22C 38/00

(21) Application number: **05192886**

(22) Date of filing: **06 . 07 . 93**

(71) Applicant: **SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD**

(72) Inventor: **KANEKO YUJI**
ISHIGAKI NAOYUKI
TOKUHARA HIROKI

(54) PRODUCTION OF R-FE-B PERMANENT MAGNET MATERIAL

(57) Abstract:

PURPOSE: To develop a sintered alloy permanent magnet having high performance by using a raw material obtd. by collapsing the cast strip of an Fe base alloy contg. specified amounts of rare earth elements and B by hydrogen occlusion, subjecting it to dehydrogenation treatment and thereafter executing pulverizing in an inert gas.

CONSTITUTION: An Fe base alloy contg., by atoms, 10 to 30% of at least one kind among rare earth elements R including Y and 2 to 28% B is formed into a cast strip

with 0.03 to 10mm thickness having a structure in which rare earth enriched phases are finely dispersed into 25 μ m by a single roll method or a double roll method, which is naturally collapsed by the expansion of the volume by hydrogen occlusion. Next, it is heated to 100 to 750°C, is subjected to dehydrogenation treatment and is pulverized in an inert gas atmosphere into fine powder of 1 to 10 μ m. This fine powder is charged to a mold at 1.4 to 3.0g/cm³ density and is instantaneously applied with a pulse magnetic field of ≥ 10 KOe. After that, compacting, sintering and aging treatment are executed to develop a sintered permanent magnet excellent in both maximum energy product and coercive force.

COPYRIGHT: (C)1995,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-18366

(43) 公開日 平成7年(1995)1月20日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 2 C 33/02	H			
38/00	3 0 3 D			

審査請求 未請求 請求項の数 2 F D (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平5-192886
(22) 出願日 平成5年(1993)7月6日

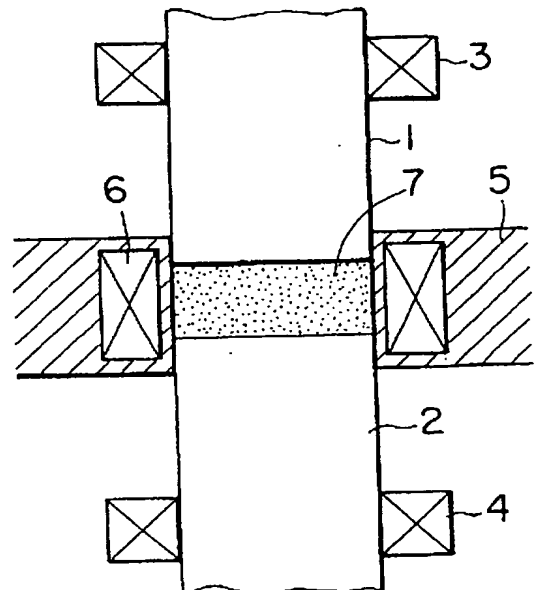
(71) 出願人 000183417
住友特殊金属株式会社
大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
(72) 発明者 金子 裕治
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72) 発明者 石垣 尚幸
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72) 発明者 徳原 宏樹
大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内
(74) 代理人 弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 R-Fe-B系永久磁石材料の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 効率よい微粉碎を可能にし、耐酸化性にすぐれかつ磁気特性のすぐれたR-Fe-B系永久磁石材料を得ることができるR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法の提供。

【構成】 特定組成を有するR-Fe-B系合金溶湯をストリップキャスティングにて特定板厚のRリッチ層が5 μ m以下に微細に分離した組織を有する鋳片となし、この鋳片にH₂吸蔵させて自然崩壊させることにより、その後、脱H₂処理して安定化させた合金粉末を微粉碎にて合金塊を構成している主相の結晶粒を細分化することが可能となり、粒度分布が均一な粉末を、従来の約2倍程度の効率で作製することができ、粉碎時にRリッチ相とR₂Fe₁₄B相も微細化され、パルス磁界を用いてプレスすることにより、磁石化すると耐酸化性にすぐれ、磁石合金の磁気特性、特に、最大エネルギー積値(BH)_{max}(MGOe)；Aと保磁力iH_c(kOe)の特性値；Bの合計値A+Bが5.9以上の値を示す高性能R-Fe-B系永久磁石が得られる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 R（但しRはYを含む希土類元素のうち、少なくとも1種）10at%～30at%、B2at%～28at%、残部Fe（但しFeの1部をCo、Niの1種または2種にて置換できる）及び不可避免的不純物からなる合金溶湯をストリップキャスティング法にて板厚0.03mm～10mmの薄板でRリッチ相が5μm以下に微細に分離した組織を有する鋳片に casting 後、前記鋳片を吸排気可能な容器に収容し、該容器内の空気をH₂ガスにて置換した後、該容器内に200 Torr～50 kg/mm²のH₂ガスを供給して得られた崩壊合金粉を脱H₂処理した後、不活性ガス気流中で微粉碎して得た平均粒径が1～10μmの微粉末をモールド内に充填密度1.4～3.0 g/cm³に充填し、瞬間的に10 kOe以上のパルス磁界をかけて配向させた後、成形し、焼結、時効処理することを特徴とするR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法。

【請求項2】 水素吸蔵により得られた崩壊合金粉末を100℃～750℃に加熱して脱H₂処理することを特徴とする請求項1に記載のR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、R（但しRはYを含む希土類元素のうち、少なくとも1種を含有）、Fe、Bを主成分とする永久磁石材料の製造方法に係り、R、Fe、Bを主成分とする合金溶湯を単ロール法あるいは双ロール法等のストリップキャスティング法にて特定板厚のRリッチ相が微細に分離した均質組織を有する鋳片を得、これをR含有Fe合金のH₂吸蔵性を利用して鋳片を自然崩壊させ、さらに脱H₂処理して安定化させて、効率よい微粉碎を可能にし、微粉末にパルス磁界をかけて配向させた後、成形して焼結することにより、磁石特性の1つである最大エネルギー積値（BH）_{max}（MGOe）；Aと保磁力iH_c（kOe）の特性値；Bの合計値A+Bが59以上の値を示す高性能R-Fe-B系永久磁石を得る製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 今日、高性能永久磁石として代表的なR-Fe-B系永久磁石（特開昭59-46008号）は、三元系正方晶化合物の主相とRリッチ相を有する組織にて高い磁石特性が得られ、一般家庭の各種電器製品から大型コンピュータの周辺機器まで幅広い分野で使用され、用途に応じた種々の磁石特性を発揮するよう種々の組成のR-Fe-B系永久磁石が提案されている。しかしながら、電気・電子機器の小型・軽量化ならびに高機能化の要求は強く、R-Fe-B系永久磁石のより一層の高性能化とコストダウンが要求されている。

【0003】 R-Fe-B系焼結磁石の残留磁束密度（Br）を高めるためには、1）強磁性相であり、主相

のR₂Fe₁₄B相の存在量を多くすること、2）焼結体の密度を主相の理論密度まで高めること、3）さらに主相結晶粒の、磁化容易軸方向の配向度を高めることが要求される。すなわち、前記1）項の達成のためには、磁石の組成を上記R₂Fe₁₄Bの化学量論的組成に近づけることが重要であるが、上記組成の合金を溶解し、鋳型に鋳造した合金塊を、出発原料としてR-Fe-B系焼結磁石を作製しようとする、合金塊に晶出したα-Feや、R-rich相が局部的に遍在していることなどから、特に微粉碎時に粉碎が困難となり、組成ずれを生ずる等の問題があった。詳述すると、前記合金塊をH₂吸蔵、脱H₂処理して機械的微粉碎をおこなう場合（特開昭60-63304号、特開昭63-33505号）、合金塊に晶出したα-Feはそのまま粉碎時に残留し、その展延性の性質のために粉碎を妨げ、又局部的に遍在したR-rich相はH₂吸蔵処理によって、水素化物を生成し、微細な粉末となるため、機械的な微粉碎時に酸化が促進されたり、またジェットミルを用いた粉碎では優生的に飛散することにより組成ずれを生ずる。

【0004】 また、前記1）項の達成のためR₂Fe₁₄Bの化学量論的組成に近づけた合金粉末を用いて焼結体を作製しようとする、焼結体の作製工程において不可避免的酸化により、液相焼結を引き起こすためのNd-rich相が酸化物を生成するため消費されて焼結できなかったり、上記R₂Fe₁₄B相の存在量を増加によって必然的に、Nd-rich相やB-rich相の存在量が減少するので、焼結体の製造をより一層困難なものにしていた。さらに、前記3）項については、通常R-Fe-B系永久磁石の製造方法において、主相結晶粒の磁化容易軸方向を揃えるために、磁界中でプレス成形する方法が採用されている。その際、磁界の印加方向とプレス加圧する方向とによって、残留磁束密度（Br）値が変化したり、また、印加磁界の強度によっても影響を受けることが知られている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 最近、鋳塊粉碎法によるR-Fe-B系合金粉末の欠点たる結晶粒の粗大化、α-Feの残留、偏析を防止するために、R-Fe-B系合金溶湯を双ロール法により、特定板の鋳片となし、前記鋳片を通常の粉末冶金法に従って、鋳片をスタンブミル・ジョークラッシャーなどで粗粉碎後、さらにディスクミル、ボールミル、アトライター、ジェットミルなど機械的粉碎法により平均粒径が3～5μmの粉末に微粉碎後、磁場中プレス、焼結時効処理する製造方法が提案（特開昭63-317643号公報）されている。しかし、前記方法では従来の鋳型に鋳造した鋳塊粉碎法の場合に比し、微粉碎時の粉碎能率の飛躍的な向上は望めず、また微粉碎時、粒界粉碎のみならず、粒内粉碎も起こるため、磁気特性の大幅の向上も達成できなかった

た。また、R-rich相が酸化に対して安定な RH_2 になっていないため、さらにR-rich相の微細で表面積が大きいために耐酸化性に劣り、工程中に酸化が進み高磁石特性が得られない。また、R-Fe-B系永久磁石材料に対するコストダウンの要求が強く、効率よく高性能永久磁石を製造することが、極めて重要になっている。このため、極限に近い特性を引き出すための製造条件の改良が必要となっている。

【0006】この発明は、上述したR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法における問題点を解消し、効率よい微粉碎を可能にし、かつ耐酸化性に優れ、しかも磁石の結晶粒の微細化により高い iH_c を発現し、さらに各結晶粒の磁化容易方向の配向度を高めて、 $(BH)_{max}$ 値(MGOe)；Aと、 iH_c 値(kOe)；Bの合計値、 $A+B \geq 59$ の値を示す高性能R-Fe-B系永久磁石材料の製造方法の提供を目的としている。

【0007】

【課題を解決するための手段】発明者らは、まずR-Fe-B系合金を出発原料として微粉碎能率の向上、かつ耐酸化性にすぐれ、磁石合金の磁気特性、特に iH_c の向上を目的に、粉碎方法について種々検討した結果、組織が微細かつ均等なR-Fe-B系合金を水素吸蔵させた後、脱 H_2 処理して安定化させた合金粉末を微粉碎した場合、微粉碎能率は従来の約2倍にも向上し、且つ微粉末にパルス磁界をかけて配向させた後、成形して焼結することにより、 $(BH)_{max}$ 値と iH_c 値の合計値が59以上の値を有し、かつ焼結磁石の iH_c が向上することを知見した。すなわち、ストリップキャスティングされた特定板厚のRリッチ相が微細に分離した組織を有する特定組成のR-Fe-B系合金に H_2 吸蔵させると、微細に分散されたRリッチ相が水素化合物を生成して体積膨張することにより、前記合金を自然崩壊させることができ、その結果、微粉碎により、合金塊を構成している主相の結晶粒を細分化することが可能となり、粒度分布が均一な粉末を作製することができる。

【0008】特に、この際Rリッチ相が微細に分散され、しかも $R_2Fe_{14}B$ 相が微細であることが重要である。しかも通常の鋳型を用いて合金塊を溶製する方法では、合金組成を $R_2Fe_{14}B$ の化学量論的組成に近づけた場合、Fe初晶の晶出が避け難く、次工程の微粉碎能を大きく低下させる要因になってしまう。そのため、合金塊を均質化させる目的で熱処理を加えて、 α -Feを消失させる手段がとられるが、主相結晶粒の粗大化と、Rリッチ相の偏析も進むため、焼結磁石の iH_c 向上を図ることが困難となる。また、主相結晶粒の磁化容易軸方向を揃える、すなわち、配向度を高めることも高Br化を達成するための必須条件である。そのため、粉末冶金的手法で製造される永久磁石材料、たとえば、ハードフェライト磁石、Sm-Co磁石ならびにR-Fe-B磁石では、その粉末を磁界中でプレスする方式が採られ

ている。

【0009】しかしながら、磁界を発生させるために通常のプレス装置（油圧プレス、機械プレス）に配置されているコイルおよび電源では、高々10kOe～20kOeの磁界しか発生することしかできず、より高い磁界を発生させるためには、コイルの巻数を多くする必要があり、また高い電源を必要とするための装置の大型化を必要とする。本発明者らは、プレス時の磁界強度と焼結体のBrとの関係を解析したところ、磁界強度を高くすればする程、高Br化でき、瞬間的に強磁界を発生させることの可能なパルス磁界を用いることによって、より一層高Br化できることを知見した。さらに、パルス磁界を用いる方法においては、一旦パルス磁界で瞬間的に配向させることが重要で、さらに、粉末を静水圧プレスによって成形することが可能であり、パルス磁界と電磁石による静磁界との組み合わせによって、磁界中プレス成形することも可能であることを知見した。

【0010】この発明は、R（但しRはYを含む希土類元素のうち、少なくとも1種）10at%～30at%、B2at%～28at%、残部Fe（但しFeの1部をCo、Niの1種または2種にて置換できる）及び不可避免の不純物からなる合金溶湯をストリップキャスティング法にて板厚0.03mm～10mmの薄板でRリッチ相が5 μ m以下に微細に分離した組織を有する鋳片に鋳造後、前記鋳片を吸排気可能な容器に収容し、該容器内の空気を H_2 ガスにて置換した後、該容器内に200Torr～50kg/mm²の H_2 ガスを供給して得られた崩壊合金粉を脱 H_2 処理した後、不活性ガス気流中で微粉碎して得た平均粒径が1～10 μ mの微粉末をモールド内に充填密度1.4～3.0g/cm³に充填し、瞬間的に10kOe以上のパルス磁界をかけて配向させた後、成形し、焼結、時効処理することを特徴とするR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法である。また、この発明は、上記の構成において、水素吸蔵により得られた崩壊合金粉末を100℃～750℃に加熱して脱 H_2 処理することを特徴とするR-Fe-B系永久磁石材料の製造方法を併せて提案する。

【0011】この発明によるR-Fe-B系永久磁石の磁気特性は、 BH_{max} が50MGOe以上の場合、 iH_c は10kOe以上であり、又 BH_{max} が45MGOe以上の場合、 iH_c は15kOe以上で、組成、製造条件等を適宜選択することにより所要の磁気特性を得ることができる。

【0012】この発明の特定組成のRリッチ相が微細に分離した組織を有する磁石材料の鋳片は、特定組成の合金溶湯を単ロール法、あるいは双ロール法によるストリップキャスティング法にて製造される。得られた鋳片は板厚が0.03mm～10mmの薄板材であり、所望の鋳片板厚により、単ロール法と双ロール法を使い分けるが、板厚が厚い場合は双ロール法を、また板厚が薄い場

合は単ロール法を採用したほうが好ましい。鋳片の板厚を 0.03mm~10mm に限定した理由は、0.03mm 未満では急冷効果が大となり、結晶粒径が 3 μ m より小となり、粉末化した際に酸化しやすくなるため、磁気特性の劣化を招来するので好ましくなく、また 10mm を超えると、冷却速度が遅くなり、 α -Fe が晶出しやすく、結晶粒径が大となり、Nd リッチ相の偏在も生じるため、磁気特性が低下するので好ましくないことによる。

【0013】この発明のストリップキャスト法により得られた特定組成の R-Fe-B 系合金の断面組織は主相の $R_2Fe_{14}B$ 結晶が従来の鋳型に鋳造して得られた鋳塊のものに比べて、約 1/10 以上も微細であり、例えば、その短軸方向の寸法は 0.1 μ m~50 μ m、長軸方向は 5 μ m~200 μ m の微細結晶であり、かつその主相結晶粒を取り囲むように R リッチ相が微細に分散されており、局部に偏在している領域においても、その大きさは 20 μ m 以下である。R リッチ相が 5 μ m 以下に微細に分離することによって、 H_2 吸蔵処理時に R リッチ相が水素化物を生成した際の体積膨張が均一に発生して細分化されるため、微粉碎にて主相の結晶粒が細分化されて粒度分布が均一な微粉末が得られる。前記鋳片はそのまま H_2 吸蔵処理してもよいが、所要の大きさに破断して、金属面を露出させて H_2 吸蔵処理したほうが好ましい。

【0014】 H_2 吸蔵処理には、例えば、所定大きさに破断した 0.03mm~10mm 厚みの鋳片を原料ケース内に挿入し、上記原料ケースを蓋を締めて密閉できる容器内に装入して密閉したのち、容器内を十分に真空引きした後、200 Torr~50 kg/cm² の圧力の H_2 ガスを供給して、該鋳片に H_2 を吸蔵させる。この H_2 吸蔵反応は、発熱反応であるため、容器の外周には冷却水を供給する冷却配管が周設して容器内の昇温を防止しながら、所定圧力の H_2 ガスを一定時間供給することにより、 H_2 ガスが吸収されて該鋳片は自然崩壊して粉化する。さらに、粉化した合金を冷却したのち、真空中で脱 H_2 ガス処理する。前記処理の合金粉末は粒内に微細亀裂が内在するので、ボール・ミル、ジェットミル等で短時間で微粉碎され、1 μ m~80 μ m の所要粒度の合金粉末を得ることができる。

【0015】この発明において、上記処理容器内を予め不活性ガスで空気を置換し、その後 H_2 ガスで不活性ガスを置換してもよい。また、鋳塊の破断大きさは、小さいほど、 H_2 粉碎の圧力を小さくでき、また、 H_2 ガス圧力は、減圧下でも破断した鋳塊は H_2 吸収し粉化されるが、圧力が大気圧より高くなるほど、粉化されやすくなる。しかし、200 Torr 未満では粉化性が悪くなり、50 kg/cm² を超えると H_2 吸収による粉化の点では好ましいが、装置や作業の安全性からは好ましくないため、 H_2 ガス圧力は 200 Torr~50 kg/cm²

m² とする。量産性からは、2 kg/cm²~10 kg/cm² が好ましい。この発明において、 H_2 吸蔵による粉化の処理時間は、前記密閉容器の大きさ、破断塊の大きさ、 H_2 ガス圧力により変動するが、5 分以上は必要である。

【0016】 H_2 吸蔵により粉化した合金粉末を冷却後、真空中で 1 次の脱 H_2 ガス処理する。さらに、真空中またはアルゴンガス中において、粉化合金を 100℃~750℃ に加熱し、0.5 時間以上の 2 次脱 H_2 ガス処理すると、粉化合金中の H_2 ガスは完全に除去できるとともに、長期保存に伴う粉末あるいはプレス成形体の酸化を防止して、得られる永久磁石の磁気特性の低下を防止できる。この発明による 100℃ 以上に加熱する脱水素処理は、すぐれた脱水素効果を有しているために上記の真空中での 1 次脱水素処理を省略し、崩壊粉を直接 100℃ 以上の真空中またはアルゴンガス雰囲気中で脱水素処理してもよい。すなわち、前述した H_2 吸蔵反応容器内で H_2 吸蔵・崩壊反応させた後、得られた崩壊粉を続いて同容器の雰囲気中で 100℃ 以上に加熱する脱水素処理を行うことができる。あるいは、真空中での脱水素処理後、処理容器から取り出して崩壊粉を微粉碎したのち、再度処理容器で 100℃ 以上に加熱するこの発明の脱水素処理を施してもよい。上記の脱水素処理における加熱温度は、100℃ 未満では崩壊合金粉内に残存する H_2 を除去するのに長時間を要して量産的でない。また、750℃ を超える温度では液相が出現し、粉末が固化してしまうため、微粉碎が困難になったり、プレス時の成形性を悪化させるので、焼結磁石の製造の場合には好ましくない。また、焼結磁石の焼結性を考慮すると、好ましい脱水素処理温度は 200℃~600℃ である。また、処理時間は処理量によって変動するが 0.5 時間以上は必要である。

【0017】次に微粉碎には、不活性ガス（例えば、 N_2 、Ar）によるジェット・ミルにて微粉碎を行う。勿論、有機溶媒（例えば、ベンゼンやトルエン等）を用いたボールミルや、アトライター粉碎を用いることも可能である。微粉碎での粉末の平均粒度は、1 μ m~10 μ m が好ましい。1 μ m 未満になると粉碎した粉末が極めて活性となり著しく酸化されやすく、発火等の恐れが生ずる。また、10 μ m を超えると粉碎されない粗大粒子が残存し、保磁力が低下したり、焼結の進行が遅く密度の低下を引き起こすことになる。より好ましくは、2~4 μ m の平均粒度の微粉末にすることである。

【0018】磁界を用いたプレスには、つぎの方法を提案する。微粉碎した粉末を不活性ガス雰囲気中でモールドに充填する。モールドは、非磁性の金属、酸化物から作製したもののほか、プラスチックやゴム等の有機化合物でも良い。粉末の充填密度は、その粉末の静止状態の嵩密度（充填密度 1.4 g/cm³）から、タッピング後の固め嵩密度（充填密度 3.0 g/cm³）の範囲が

好ましい。従って充填密度は $1.4 \sim 3.0 \text{ g/cm}^3$ に限定する。これを、空心コイル、コンデンサー電源によるパルス磁界を加えて粉末の配向を行う。配向の際、上下パンチを用いて圧縮を行いながら、繰り返し、パルス磁界を加えてもよい。パルス磁界の強度は大きければ大きい程良く、最低 10 kOe 以上は必要とする。パルス磁界の時間は、図2の時間と磁界強さのグラフに示す如く、 $1 \mu\text{msec} \sim 10 \text{ sec}$ が好ましく、さらには $5 \mu\text{msec} \sim 100 \text{ msec}$ が好ましく、パルス磁界の印加回数は $1 \sim 10$ 回、さらに、好ましくは $1 \sim 5$ 回である。配向後の粉末は、静水圧プレスによって固めることができる。この際、可塑性のあるモールドを使用した場合には、そのまま、静水圧プレスを行うことが可能である。また、パルス磁界による配向とプレスとを連続的に行うためには、ダイス内部にパルス磁界を発生させるコイルを埋め込み、パルス磁界を用いて配向させた後、通常の磁界中プレス方法で成形することも可能である。

【0019】以下に、この発明における、希土類・ボロン・鉄系永久磁石合金用鋳塊の組成限定理由を説明する。この発明の永久磁石合金用鋳塊に含有される希土類元素Rはイットリウム(Y)を包含し、軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素である。Rとしては、軽希土類をもって足り、特にNd, Prが好ましい。また通常Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物(ミッシュメタル、ジジム等)を入手上の便宜等の理由により用いることができ、Sm, Y, La, Ce, Gd等は他のR、特にNd, Pr等との混合物として用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくともよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差し支えない。Rは、R-Fe-B系永久磁石を製造する合金鋳塊の必須元素であって、 10 原子%未満では高磁気特性、特に高保磁力が得られず、 30 原子%を越えると残留磁束密度(B_r)が低下して、すぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、Rは 10 原子% ~ 30 原子%の範囲とし、特に好ましい範囲はRは $12 \sim 15 \text{ at\%}$ である。

【0020】Bは、R-Fe-B系永久磁石を製造する合金鋳塊の必須元素であって、 2 原子%未満では高い保磁力(iHc)は得られず、 28 %原子を越えると残留磁束密度(B_r)が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは 2 原子% ~ 28 原子%の範囲と特に好ましい範囲は $4 \sim 8 \text{ at\%}$ である。

【0021】Feは 42 原子%未満では残理磁束密度(B_r)が低下し、 88 原子%を超えると高い保磁力が得られないため、Feは $77 \sim 84 \text{ at\%}$ が好ましく、さらに好ましくはFe 77 原子% ~ 84 原子%である。また、Feの一部をCo、Niの1種又は2種で置換する理由は、永久磁石の温度特性を向上させる効果及び耐食性を向上させる効果が得られるためであるが、Co、N

iの1種又は2種はFeの 50 %を越えると高い保磁力が得られず、すぐれた永久磁石が得られない。よって、CoはFeの 50 %を上限とする。

【0022】この発明の合金鋳塊において、高い残留磁束密度と高い保磁力を共に有するすぐれた永久磁石を得るためには、R 12 原子% ~ 15 原子%、B 4 原子% ~ 8 原子%、Fe 77 原子% ~ 84 原子%が好ましい。また、この発明による合金鋳塊は、R、B、Feの他、工業的生産上不可避的な不純物の存在を許容できるが、Bの一部を 4.0 原子%以下のC、 3.5 原子%以下のP、 2.5 原子%以下のS、 3.5 原子%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で 4.0 原子%以下で置換することにより、磁石合金の製造性改善、低価格化が可能である。さらに、前記R、B、Fe合金あるいはCoを含有するR-Fe-B合金に、 9.5 原子%以下のAl、 4.5 原子%以下のTi、 9.5 原子%以下のV、 8.5 原子%以下のCr、 8.0 原子%以下のMn、 5 原子%以下のBi、 12.5 原子%以下のNb、 10.5 原子%以下のTa、 9.5 原子%以下のMo、 9.5 原子%以下のW、 2.5 原子%以下のSb、 7 原子%以下のGe、 35 原子%以下のSn、 5.5 原子%以下のZr、 5.5 原子%以下のHfのうち少なくとも1種添加含有させることにより、永久磁石合金の高保磁力が可能になる。この発明のR-B-Fe系永久磁石において、結晶相は主相が正方晶であることが不可欠であり、特に、微細で均一な合金粉末を得て、すぐれた磁気特性を有する焼結永久磁石を作成するのに効果的である。

【0023】この発明による合金の微粉砕粉末の粒度は、平均粒度 $80 \mu\text{m}$ を越えると、永久磁石の作成時にすぐれた磁気特性、とりわけ高い保磁力が得られず、また、平均粒度が $1 \mu\text{m}$ 未満では、焼結磁石とした場合の製作工程、すなわち、プレス成形、焼結、時効処理工程における酸化が著しく、すぐれた磁気特性が得られないため、 $1 \sim 80 \mu\text{m}$ の平均粒度とする。さらに、すぐれた磁気特性を得るには、平均粒度 $2 \sim 10 \mu\text{m}$ の合金粉末が最も望ましい。

【0024】

【作用】この発明は、ストリップキャストされた特定板厚の特定組成を有するR-Fe-B系合金にH₂吸蔵させることにより、微細に分散されたRリッチ相が水素化物を生成して体積膨張させて前記合金を自然崩壊させ、その後微粉砕にて合金塊を構成している主相の結晶粒を細分化することが可能となり、粒度分布が均一な粉末を作製することができ、この際Rリッチ相が微細に分散され、かつR₂Fe₁₄B相も微細化され、脱H₂処理して安定化させた合金粉末を微粉砕した場合、微粉砕能は従来の約2倍にも向上するため、製造効率が大幅に向上するとともに、パルス磁界を用いて瞬間的に配向した後、プレス成形、焼結することにより、B_r、BH(max)及びiHcを著しく改善向上したR-Fe-B系

永久磁石が得られる。

【0025】

【実施例】

実施例1

高周波溶解炉にて溶解して得られたNd13.4-B6.0-Fe80.6組成の合金溶湯を直径200mmの銅製ロール2本を併設した双ロール式ストリップキャスターを用い、板厚約1mmの薄板状鋳片を得た。前記鋳片内の結晶粒径は短軸方向の寸法0.5μm~15μm、長軸方向寸法は5μm~80μmであり、Rリッチ相は主相を取り囲むように3μm程度に微細に分離して存在する。前記鋳片を50mm角以下に破断後、前記破断片1000gを吸排気可能な密閉容器内に収容し、前記容器内にN₂ガスを30分間流入して、空気と置換した後、該容器内に3kg/cm²のH₂ガスを2時間供給してH₂吸蔵により鋳片を自然崩壊させて、その後真空中で500℃に5時間保持して脱H₂処理した後、室温まで冷却し、さらに100メッシュまで粗粉碎した。次いで、前記粗粉碎を採取した800gをジェットミルで粉碎して平均粒度3.5μmの合金粉末を得た。得られた合金粉末を用いて、ゴム質のモールドに原料粉末を充填し、パルス磁界60kOeを瞬間的に付加して、配向させた後、静水圧プレス装置にて2.5T/cm²の圧力で静水圧プレスした。モールドから取り出した成形体を1090℃で3時間の条件にて焼結し、600℃で1時間の時効処理を行って、永久磁石を得た。得られた永久磁石の磁石特性を表1に表す。

【0026】実施例2

実施例1で得られた粉末を、図1に示す如く、上下パンチ1、2の外周部に静磁界用コイル3、4を配置し、ダイス5内にパルス磁界用コイル6を配設して、原料粉末7にパルス磁界と通常の静磁界とを併用して作用させることができるプレス装置を用いて、まず、約30kOeのパルス磁界で配向させた後、約12kOeの磁界中でプレス成形した。その後、成形体は実施例1と同一の条件で、焼結、時効処理を行った。得られた永久磁石の磁石特性を第1表に示す。

【0027】実施例3

実施例1と同様にNd13.0-Dy0.5-B6.5-Co1.0-Fe7の合金をストリップキャスティングし、薄板状鋳片を得た。これを50mm角以下に破断後、1000gを実施例1と同様にH₂吸蔵により自然崩壊させた後、真空中で6時間の脱H₂処理した。これを粗粉碎後、ジェットミル粉碎して、平均粒度3.5μmの粉末を得た。得られた粉末を実施例1と同様にパル

ス磁界配向、静水圧プレスして、成形体を作製し、同様に焼結熱処理を行った。得られた永久磁石の磁石特性を表1に示した。

【0028】比較例1

実施例1で得られた粉末を通常の磁界中プレス装置で約12kOeの磁界中でプレス成形し、その後、実施例1と同一条件で焼結・時効処理を行った。得られた永久磁石の磁石特性を表1に示した。

【0029】比較例2

高周波溶解炉にて溶解して得られたNd13.4-B6.0-Fe80.6組成の合金溶湯を鉄製鋳型に铸造した。得られた合金塊の組織を観察したところ、初晶Feの晶出が認められたため、1050℃で10時間熱処理して均質化処理を行った。鋳塊の結晶粒径は、短軸方向30~150μm、長軸方向100~数mmにもなり、R-リッチ相が局部的150μm程度の大きさで偏析していた。この合金塊を粗砕後、実施例1と同様の方法でH₂吸蔵処理、脱H₂処理して、粗粉末を得た。さらに、実施例1と同一の条件でジェットミル粉碎し、平均粒径約3.7μmの合金で得られた粉末を約12kOeの磁界中でプレス成形し、実施例1と同一の条件で、焼結、熱処理を行った。得られた永久磁石の特性を表1に示す。

【0030】比較例3

実施例1と同一組成、同一板厚のストリップキャスティング鋳片を50mm以下に粗粉碎後、H₂吸蔵処理、脱H₂処理することなく、前記粗粉碎粉1000gをスタンプミルにて1時間粉碎して100メッシュの粗粉碎粉となした後、ジェットミル粉碎し、平均粒径約3.8μmの合金粉末を得た。前記合金粉末を約12kOe磁界中での磁界中プレス、焼結、時効処理を行って永久磁石を得た。得られた永久磁石の磁気特性を表1に表す。

【0031】比較例4

Nd13.0-Dy0.5-B6.5-Co1.0-Fe79の組成の合金を比較例2と同様の手法で铸造した。得られた合金塊には、Fe初晶が晶出していたため、1050℃×6Hrの熱処理を行った。この合金塊を粗粉碎後、実施例1と同時にH₂吸蔵処理し、真空中で脱H₂処理を行った。これを粗粉碎後、ジェットミル粉碎して、平均粒径約3.7μmの粉末を得た。さらに、約12kOeの磁界中で磁界中プレスした後、実施例1と同一条件で、焼結・熱処理を行った。得られた永久磁石の磁気特性を表1に表す。

【0032】

【表1】

11

12

	Br (kG)	Hc (kOe)	(BH)max (MGOe)	iHc (kOe)
実施例1	14.7	11.0	52.5	11.0
実施例2	14.6	10.9	51.9	10.9
実施例3	13.6	12.9	45.2	15.0
比較例1	14.3	9.5	48.0	9.9
比較例2	14.2	8.3	47.5	8.6
比較例3	14.0	8.5	45.5	9.0
比較例4	13.0	12.5	40.5	13.5

【0033】

【発明の効果】この発明による製造方法は、特定組成を有するR-Fe-B系合金溶湯をストリップキャスト
 ングにて特定板厚の鋳片となし、この鋳片にH₂吸蔵さ
 せて自然崩壊させることにより、その後、脱H₂処理し
 て安定化させた合金粉末を微粉碎にて合金塊を構成して
 いる主相の結晶粒を細分化することが可能となり、粒度
 分布が均一な粉末を、従来の約2倍程度の効率で作製す
 ることができ、粉碎時にRリッチ相とR₂Fe₁₄B相も
 微細化され、パルス磁界を用いてプレスすることによ
 り、磁石化すると耐酸化性にすぐれ、磁石合金の磁気特
 性、特に最大エネルギー積値(BH)max(MGO
 e)；Aと保磁力iHc(kOe)の特性値；Bの合計

値A+Bが5.9以上の値を示す高性能R-Fe-B系永
 久磁石が得られる。

【図面の簡単な説明】

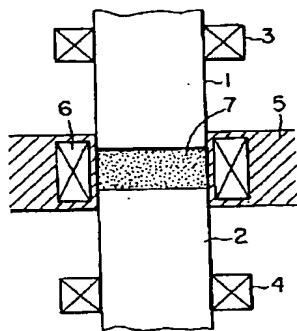
【図1】パルス磁界と通常の静磁界とを併用して作用さ
 せることができるプレス装置の説明図である。

【図2】パルス磁界の時間と磁界強さとの関係を示すグ
 ラフである。

【符号の説明】

- 1, 2 パンチ
- 3, 4 静磁界用コイル
- 5 ダイス
- 6 パルス磁界用コイル
- 7 原料粉末

【図1】



【図2】

